

Синхронизация мод твердотельных лазеров с помощью насыщающихся поглотителей, основанных на одностенных углеродных нанотрубках^{*,**}

Ф.Ротермунд, В.Б.Чо, С.Й.Чой, И.Х.Баек, Дж.Х.Джим, С.Ли, А.Шмидт, Г.Штайнмайер, У.Грибнер, Д.-И.Джеом, К.Ким, В.Петров

Обсуждается универсальное использование насыщающихся поглотителей на основе одностенных углеродных нанотрубок для синхронизации мод твердотельных лазеров в диапазоне 0.8–2 мкм. Подчеркнуты преимущества таких поглотителей по сравнению с полупроводниковыми насыщающимися поглотителями. Кратко описаны процесс производства и основные оптические свойства насыщающихся поглотителей на основе одностенных углеродных нанотрубок, а также дан обзор экспериментальных результатов, полученных с фемтосекундными и пикосекундными твердотельными лазерами различных типов в стационарном режиме генерации излучения. Также показано, что один и тот же гибридный насыщающийся поглотитель, работающий на пропускание, может быть использован для синхронизации мод четырех различных типов лазеров, функционирующих в диапазоне длин волн 1–2 мкм.

Ключевые слова: одностенные углеродные нанотрубки, пассивная синхронизация мод, твердотельные лазеры.

1. Введение

Недавние исследования показали, что одностенные углеродные нанотрубки (ОУНТ) представляют собой реальную альтернативу широко распространенным зеркалам на основе полупроводниковых насыщающихся поглотителей (SESAM) и могут с успехом использоваться в качестве сверхбыстрых насыщающихся поглотителей (НП) для синхронизации мод твердотельных лазеров. Однако в то время как SESAM имеют нелинейность в узкой спектральной полосе, сложны в производстве и требуют управляемой имплантации дефектов для получения сверхбыстрых времен отклика, НП на основе ОУНТ характеризуются широкополосным поглощением с большой нелинейностью третьего порядка и могут быть изготовлены относительно простыми методами. Полосой поглощения этих поглотителей можно управлять, меняя диаметр и хиральность нанотрубок, и, в зависимости от электронных переходов в полупроводниковых нанотрубках, перекрывать спектральный диапазон ближнего ИК от ~0.8 до ~2.0 мкм. Кроме того, такие НП могут быть сконструированы для работы на пропускание, что обеспечивает их работоспособность в широком спектральном интервале.

Впервые пассивная синхронизация мод с помощью ОУНТ-НП была реализована в лазерах на легированных Ег волокнах [1], и в подавляющем большинстве последующих работ использовались именно такие волоконные

лазеры, т. к. в них усиление на один проход легко допускает введение относительно высоких ненасыщающихся потерь (см., напр., [2, 3]). Для применения ОУНТ-НП в твердотельных лазерах необходимо максимально уменьшить ненасыщающиеся потери [3]. Для первой демонстрации синхронизации мод в твердотельном лазере использовался тот же переход Er^{3+} в стекле для длины волны 1.57 мкм [4]. Это стимулировало множество исследований с разными твердотельными лазерами на примесях редкоземельных и переходных металлов, имеющих разные спектральные характеристики, такие как сечения испускания, ширины линий флуоресценции и времена жизни. В настоящей статье представлены результаты, полученные в режимах непрерывной синхронизации мод с использованием ОУНТ-НП пропускающего и отражающего типов в разных твердотельных лазерах, работающих в диапазоне 0.8–2 мкм при пико- и фемтосекундной длительности импульса излучения. К ним относятся фемтосекундные лазеры на $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ (сапфир) с длиной волны генерации около 0.8 мкм, фемтосекундные Yb -лазеры, фемто- и пикосекундные Nd -лазеры в спектральной области 1 мкм, фемтосекундные лазеры на $\text{Cr}:\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ (форстерит) вблизи 1.25 мкм, пикосекундные Nd -лазеры на ~1.34 мкм, фемтосекундные лазеры на $\text{Cr}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG) вблизи 1.5 мкм и Er -лазеры на ~1.6 мкм, а также пикосекундные Tm -лазеры на ~1.95 мкм.

2. Изготовление и свойства ОУНТ-НП

В зависимости от хиральности ОУНТ обладают металлическими или полупроводниковыми свойствами. Полупроводниковые ОУНТ проявляют выраженную оптическую нелинейность. Они химически стабильны и устойчивы к оптическим повреждениям. Так как резонанс поглощения на электронном межзонном переходе зависит от диаметра и хиральности, естественные смеси ОУНТ автоматически обеспечивают широкополосное поглощение в ближнем ИК диапазоне 0.8–2 мкм (рис. 1), соответствующем спектральному диапазону материалов твердотельных лазеров, легированных ионами нескольких ред-

* Доложена на XIX Международной конференции по современным лазерным технологиям (ALT'11), Болгария, Золотые пески, сентябрь 2011 г.

** Перевод с англ. В.В.Шувалова.

F. Rothermund, W.B. Cho, S.Y. Choi, I.H. Baek, J.H. Yim, S. Lee, D.-I. Yeom, K. Kim. Division of Energy Systems Research, Ajou University, Korea, 443-749 Suwon

A. Schmidt, G. Steinmeyer, U. Griebner, V. Petrov. Max Born Institute for Nonlinear Optics and Short Pulse Spectroscopy, Germany, 12489 Berlin, 2A Max-Born-Str.; e-mail: petrov@mbi-berlin.de

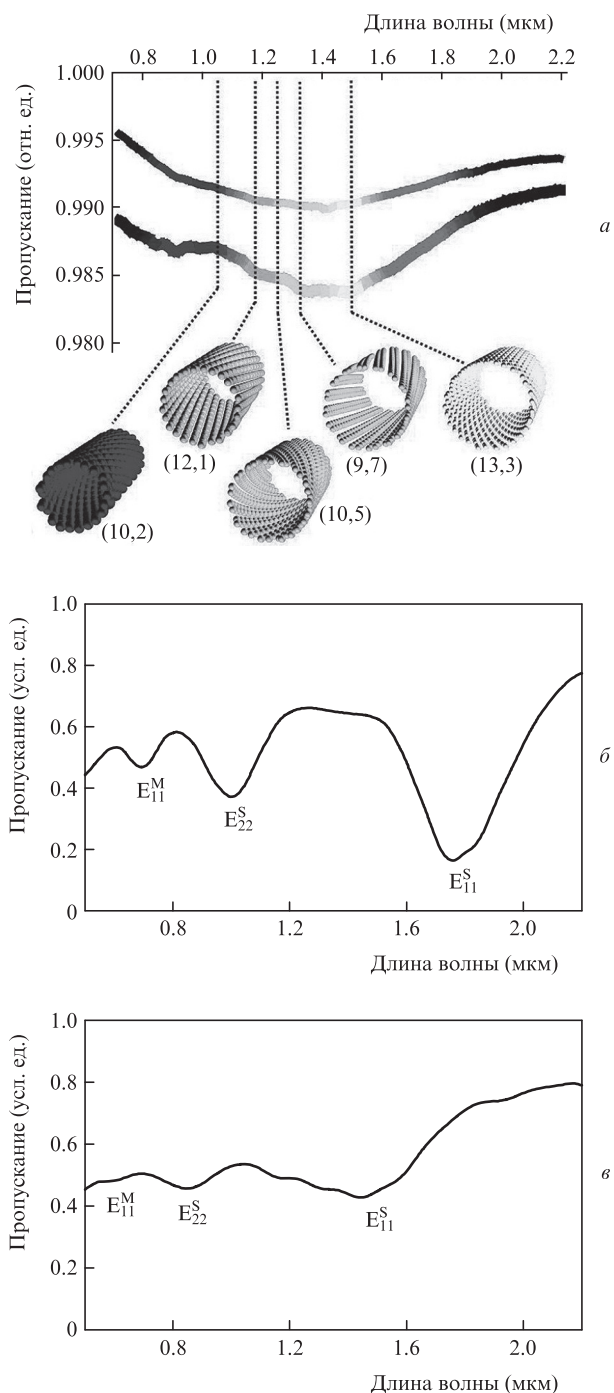


Рис.1. Спектры пропускания двух СО-ОУНТ насыщающихся поглотителей с разными оптическими плотностями (спектральное положение поглощения, вызванного фракциями нанотрубок с вектором хиральности (n, m) , идентифицированными по данным спектроскопии спонтанного комбинационного рассеяния, показано пунктирными линиями) (а) и типичные спектры поглощения дуговых ОУНТ (диаметр 1.2–1.4 нм) (б) и СО-ОУНТ (диаметр 0.8–1.2 нм) (в) насыщающихся поглотителей с указанием переходов (s – полупроводник, m – металл).

козельных (Yb^{3+} , Nd^{3+} , Er^{3+} , Tm^{3+}) и переходных (Ti^{3+} , Cr^{4+}) металлов.

Как и в любом НП, остаточные потери в полностью насыщенных ОУНТ должны быть настолько низкими, насколько это возможно, и в любом случае малыми по сравнению с лазерным усилением на один проход. Это условие легко выполнить в волоконных лазерах, однако

использование ОУНТ для синхронизации мод в твердотельных лазерах при характерной для них выходной связи в несколько процентов является гораздо более сложной задачей. К сожалению, вне зависимости от использованной технологии изготовления ненасыщающиеся потери всегда присутствуют. Прежде всего излучение всегда будет рассеиваться в ОУНТ. Если их рассматривать как полностью изолированные цилиндрические объекты, то будет преобладать рэлеевское рассеяние с сечением $\sigma_{\text{cyl}}(\lambda) \propto r^4 \lambda^{-3}$ при радиусе нанотрубки r и длине волны λ . В зависимости от способа изготовления ОУНТ и процесса нанесения покрытия могут происходить более или менее выраженные их жгутование и скручивание. Это вызывает переплетение нанотрубок и, в конечном счете, формирование макроскопических объектов, похожих на мячи, с намного менее благоприятными для единичного рассеяния сечениями $\sigma(\lambda) \propto r^6 \lambda^{-4}$, которые в итоге могут привести к рассеянию Ми. С другой стороны, однако, жгутование может также до некоторой степени приводить к увеличению числа взаимодействий трубка–трубка. Этот эффект способен благотворно влиять на ускорение релаксации поглотителя, но имеет гораздо менее выраженное воздействие на рассеяние, чем скручиваемость. Управление статистическим распределением параметров нанотрубок является, следовательно, ключом к балансировке ненасыщающихся потерь и ускоренной релаксации. Наконец, при использовании ОУНТ в качестве НП могут также возникать брэгговские потери в схеме на отражении либо френелевские потери в схеме на пропускании.

Первые исследования применения НП на основе ОУНТ для синхронизации мод твердотельных лазеров обнаружили, что при отношении полезных (насыщающихся) и нежелательных (ненасыщающихся) потерь, не превышающем 1:2, ненасыщающиеся потери составляют около 1%. В некоторых случаях наблюдались также относительно высокие плотности потока энергии насыщения ($F_{\text{sat}} > 50$ мДж/см²) [5], что может привести к синхронизации мод с модуляцией добротности и к оптическому пробую в резонаторах твердотельных лазеров. Таким образом, применение НП на ОУНТ для синхронизации мод твердотельных лазеров было до сих пор весьма ограниченным. Обзор всех проведенных экспериментов будет представлен в следующем разделе. В большинстве наших собственных экспериментов по синхронизации мод с НП на основе ОУНТ использовались нанотрубки, выращенные в дуговом разряде (дуговые ОУНТ) либо синтезированные методом разложения СО при высоком давлении (СО-ОУНТ). По сравнению с нанотрубками, выращенными этим методом, дуговые ОУНТ длиннее и проявляют более сильную тенденцию к скручиванию и формированию шарообразных агрегатов.

В наших экспериментах для изготовления НП использовались дуговые ОУНТ (Ijjin Nanotech) либо СО-ОУНТ (Unidym) без дополнительной очистки, т. к. термогравиметрический анализ показал, что их беспрепятственность достигает 90%. ОУНТ сперва высушивались в вакууме, а затем диспергировались в дихлорбензоле с помощью ультразвукового взбалтывания при концентрациях 0.1–0.25 мг/мл. Для повышения растворимости ОУНТ во время ультразвукового процесса добавлялся поли(мета-фениленвинилен-2,5-диоктокси-пара-фениленвинилен) (ПмФВ). Подробную информацию об ультразвуковой процедуре для дуговых ОУНТ можно найти в [6]. При применении аналогичной процедуры для СО-ОУНТ жгутование сравни-

тельно длинных нанотрубок было слишком сильным, а результирующие потери на рассеяние – довольно большими. Таким образом, многокаскадный процесс обработки ультразвуком использовался для разрушения жгутов и ломки более длинных нанотрубок (подробнее см. [7]). Отдельно приготовленный раствор полиметилметакрилата (ПММА) смешивался с дисперсными ОУНТ в объемном отношении 1:1, а затем снова обрабатывался ультразвуком и перемешивался. Пленки ОУНТ-ПММА на кварцевых подложках были получены в одноэтапном процессе методом центрифугирования с использованием различных скоростей вращения и управления пропуском за счет изменения толщины пленки и (в основном) концентрации ОУНТ. В качестве альтернативы для изготовления отражающих устройств НП идентичные пленки могли быть нанесены на коммерческие высокоотражающие диэлектрические зеркала. Покрытые пленками образцы окончательно спекались при температуре 150 °С. Результирующая толщина слоя ОУНТ-ПММА обычно составляла 200–300 нм. Слой осажденного поглотителя был однороден по всей поверхности подложки. Никаких просветляющих покрытий на поверхности, покрытые ОУНТ-ПММА, не осаждалось.

На рис.1,*a* представлены типичные спектры пропускания двух НП пропускающего типа, изготовленных при различных концентрациях СО-ОУНТ. Сверхширокая полоса поглощения в диапазоне 1–1.8 мкм обусловлена, главным образом, перекрытием первых межзонных переходов (E_{11}) в полупроводниковых ОУНТ разных диаметров и хиральности и дальнейшим уширением, связанным с межтрубочным взаимодействием. Спектроскопия спонтанного комбинационного рассеяния ОУНТ и композитных пленок ОУНТ-ПММА дает информацию о диаметре и хиральности распределенных ОУНТ. Эти измерения показали наличие ОУНТ пяти хорошо видных хиральностей, резонансное поглощение которых локализовано в спектральной области между 1 и 1.5 мкм (рис.1,*a*). Также могли присутствовать и другие виды ОУНТ, способствующие широкополосному поглощению (хотя они и не были выявлены в спектрах комбинационного рассеяния [7]).

Межзонный переход E_{22} СО-ОУНТ может быть также использован для спектральной области с $\lambda = 800$ нм (лазеры на Ti:сапфире, рис.1,*b*). Видно, что полосы поглощения в НП на базе дуговых ОУНТ сдвинуты в длинноволновую область спектра, и, значит, межзонный переход E_{22} подходит для лазеров с $\lambda \sim 1$ мкм (легированных Nd и Yb), а межзонный переход E_{11} – для лазеров с $\lambda = 2$ мкм (легированных Tm). Этот сдвиг длин волн является следствием разного распределения ОУНТ по хиральности и диаметру.

Изображения НП, полученные методом сканирующей электронной микроскопии (SEM), показали, что СО-ОУНТ в основном растянуты [7]. В данном случае можно ожидать низких потерь на рассеяние, т.к. ОУНТ не очень скручены или переплетены друг с другом, как это часто наблюдалось в более ранних исследованиях. Изображения, полученные методом просвечивающей электронной микроскопии (ТЕМ) высокого разрешения, выявили небольшие (диаметром до 20 нм) жгуты различных ОУНТ [7]. Такая топология жгутов может быть полезной, т.к. она приводит к сильной связи между трубками при умеренном росте рэлеевского рассеяния.

Нелинейно-оптические характеристики ОУНТ-НП могут быть изучены по нелинейному пропусканию и методом

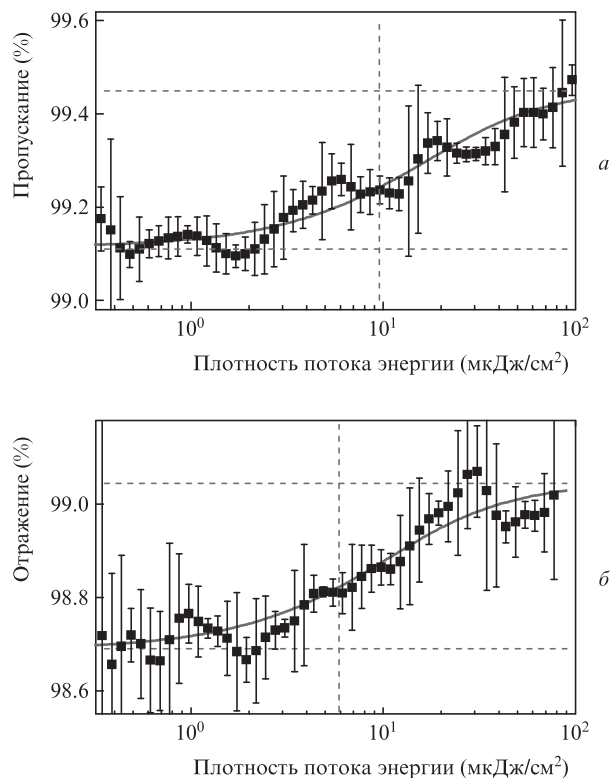


Рис.2. Нелинейное пропускание и отражение насыщающегося поглотителя на основе СО-ОУНТ пропускающего (глубина модуляции 0.37%, ненасыщающиеся потери 0.95%) (*a*) и отражающего (глубина модуляции 0.34%, ненасыщающиеся потери 1.3%) (*b*) типов на $\lambda = 1.3$ мкм вблизи центра полосы поглощения при длительности импульса 100 фс. Жирные кривые отображают аппроксимации модельной функцией с результирующими значениями насыщенного и ненасыщенного пропускания или отражения (горизонтальные штриховые линии) и плотностью потока энергии насыщения $F_{\text{sat}} = 9.5$ (*a*) и 6.0 мкДж/см² (*b*) (вертикальные штриховые линии).

накачки – зондирования в диапазоне длин волн 0.8–2 мкм [6, 7]. В экспериментах по нелинейному пропусканию типичное ненасыщающееся поглощение составляло $\sim 1\%$, но в некоторых случаях – менее 0.5%, глубина модуляции была равна 0.3%–0.4% (рис.2). В лучшем случае ненасыщающиеся и насыщающиеся потери соизмеримы. Низкие потери в СО-ОУНТ связаны с тенденцией к относительно слабому скручиванию и с их склонностью к расплетанию и жгутованию во время ультразвуковой обработки [7]. Другим благоприятным фактором может быть меньшая длина СО-ОУНТ, что обусловлено многоступенчатостью процесса ультразвуковой обработки. Все эти эффекты вместе препятствуют формированию шарообразных объектов или их прекурсоров.

Время релаксации насыщающегося поглощения для ОУНТ составляет ~ 1 пс. Зависимости, полученные методом накачки – зондирования, могут быть подвергнуты деконволюции с использованием биэкспоненциальной аппаратной функции, физически оправданной быстрой внутризонной релаксацией носителей в нерезонансно возбуждаемых нанотрубках и более медленной межзонной рекомбинацией носителей в резонансно возбуждаемых нанотрубках (рис.3). Деконволюция данных, полученных для насыщающихся поглотителей СО-ОУНТ пропускающего типа, дает время быстрой релаксации от ~ 70 фс на $\lambda = 1060$ нм до ~ 300 фс на 1.55 мкм [7]. Эта тенденция обусловлена доминирующим быстрым внутризонным вкла-

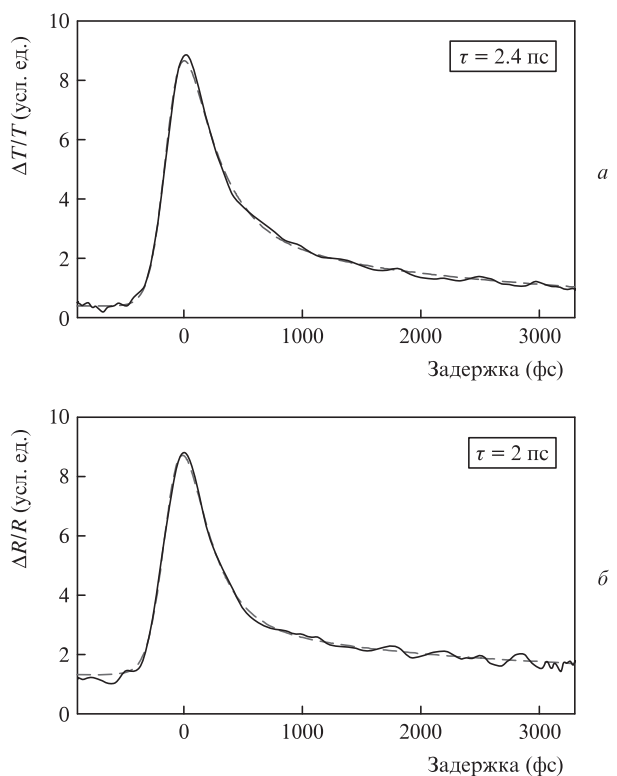


Рис.3. Измерения пропускания (а) и отражения (б) насыщающегося поглотителя на основе СО-ОУНТ методом возбуждения–зондирования на длине волны 1.3 мкм при длительности импульса 100 фс. Штриховые кривые – аппроксимация данных эксперимента (сплошные кривые). Указанные временные константы соответствуют медленным релаксационным процессам.

дом, меньшим в окрестности переходов E_{11} самых больших нанотрубок в смеси. Медленная компонента, однако, также отчетливо видна, и она порождает небольшой пьедестал при положительных задержках, который отсутствует при $\lambda = 1.92$ мкм (виден только слабый быстрый отклик). Ясно, что НП на СО-ОУНТ менее подходят для работы на этой конкретной длине волны, чем дуговые ОУНТ (рис.1,б). Их явно различное поведение на 1.92 мкм еще раз подтверждает модель с двумя временами релаксации, т. к. прямые электронные переходы ниже энергии электронного возбуждения самых больших нанотрубок в смеси уже невозможны. Измеренные времена восстановления перехода E_{11} (70–300 фс) меньше полученных для перехода E_{22} в ОУНТ-поглотителях, изготовленных методами дугового разряда [6] или лазерной абляции [5]. Это можно объяснить згустованием нанотрубок и, в частности, их ярко выраженной тенденцией к совместному скручиванию. Время медленной релаксации для обоих типов ОУНТ составило 1–2 пс. И, наконец, плотность потока энергии насыщения для поглотителей СО-ОУНТ (~ 10 мкДж/см², см. рис.2) также оказывается большей, чем для дуговых ОУНТ (5 мкДж/см²) [6]. Однако эти значения в общем не так уж сильно различаются, и в любом случае они достаточно малы, чтобы избежать неустойчивостей, связанных с модуляцией добротности. Поскольку первичные ОУНТ, изготовленные любым методом, в конечном счете схожи, это различие может быть следствием только разных распределений по размеру и хиральности либо микроскопических порядков.

На длине волны 800 нм (переход E_{22} в СО-ОУНТ) константы релаксации были близки, однако глубина модуля-

ции была меньше (0.15%), тогда как плотность потока энергии насыщения составляла ~ 30 мкДж/см². Более того, на этой длине волны при потоке свыше 200 мкДж/см² начинает действовать двухфотонное поглощение (ТРА).

В целом характеристики НП на основе ОУНТ очень схожи с характеристиками SESAM (в тех узких диапазонах длин волн, где такие устройства коммерчески доступны), за исключением плотности потока энергии насыщения, которая в последних выше примерно на один порядок. Это значит, что с ОУНТ-НП в стационарном непрерывном режиме можно ожидать устойчивой работы при синхронизации мод в более широком диапазоне мощностей, а также на малых мощностях, приближающихся к пороговым. Помимо более простой и дешевой технологии изготовления, ОУНТ-НП должны иметь более высокий порог пробоя по сравнению с SESAM, что было подтверждено в нескольких случаях, по крайней мере по отношению к коммерчески доступным SESAM.

3. Синхронизация мод в объемном твердотельном лазере в стационарном непрерывном режиме

Здесь мы приведем обзор результатов, полученных на настоящий момент для стационарных твердотельных лазеров с синхронизацией мод, поскольку режим генерации в импульсных системах (например, при накачке лампой-вспышкой или с одновременной модуляцией добротности) существенно отличается. В табл.1 обобщены основные характеристики, достигнутые для различных лазерных материалов и различных типов НП на основе ОУНТ.

Как уже упоминалось, первым успешным лазером с синхронизацией мод в ОУНТ-НП был лазер на стекле с эрбием [4], генерировавший импульсы длительностью 68 фс при длине волны излучения 1570 нм и диодной накачке на 980 нм. В качестве выходного зеркала был использован НП отражательного типа, и на этой длине волны не было необходимости в какой-либо компенсации дисперсии. Второй лазер на стекле с эрбием с синхронизацией мод на отражательном ОУНТ-НП [5] имел схожую конструкцию при диодной накачке на 976 нм. Без компенсации дисперсии были получены импульсы длительностью 1.8 пс, наряду с тем, что включение зеркал интерферометра Жири–Турнуа привело к повышению средней выходной мощности, однако при этом длительность импульса по сравнению с [4] увеличилась.

В той же работе [4] было лишь замечено, что лазер на стекле с неодимом также генерирует фемтосекундные импульсы при синхронизации мод в ОУНТ-НП. Совсем недавно лазер на силикатном стекле с неодимом и синхронизацией мод в ОУНТ-НП отражательного типа генерировал короткие (99 фс) импульсы [17] при накачке маломощным (200 мВт) лазерным диодом на $\lambda = 805$ нм. В этом случае дисперсия компенсировалась двумя внутррезонаторными призмами. Общая производительность и характеристики такого лазера сравнивались с параметрами лазера на SESAM. Аналогичное сравнение с лазером на фосфатном стекле с неодимом, в общем генерирующим импульсы больших длительностей, было проведено в работе [13] с использованием того же источника накачки и ОУНТ-НП с одно- и двухпризменной конфигурациями резонатора.

Табл.1. ОУНТ-НП непрерывные объемные твердотельные лазеры с синхронизацией мод.

Материал	Длина волны (нм)	Длительность импульса (фс)	Частота повторения (МГц)	Мощность (мВт)	Тип ОУНТ (Т – пропускание, R – отражение)	Литература
Ti:Al ₂ O ₃	810	600	110	45	СО (R)	[8]
	800	62	99.4	600	СО (Т)	[9]
Yb:KY(WO ₄) ₂	1038	140	88	32	Дуговой разряд (Т)	[10]
	1049	83	84	24	Дуговой разряд (R)	
Yb:KLu(WO ₄) ₂	1048	115	89	30	Дуговой разряд (Т)	[11]
Nd:BaY ₂ F ₈	1049	8500	194	70	Дуговой разряд (R)	[12]
Nd:фосфатное стекло	1054	~200	—	—	СО (R)	[4]
	1056	160	194	8	Дуговой разряд (R)	[13]
Nd:GdVO ₄	1063	8400	122	3630	Дуговой разряд (Т)	[14]
Nd:Lu _{0.15} Y _{0.85} VO ₄	1064	19000	150	902	Дуговой разряд (Т)	[15]
Nd:Y ₃ Al ₅ O ₁₂ (YAG керамика)	1064	8300	90	130	СО (R)	[16]
Nd:силикатное стекло	1070	99	194	10	Дуговой разряд (R)	[17]
	1245	120	79	202	СО (Т)	[18]
Cr:Mg ₂ SiO ₄	1250	80	78	295	СО (R)	[19]
	1342	16500	127	800	СО (Т)	[20]
Cr:Y ₃ Al ₅ O ₁₂ (YAG)	1495	92	85	110	СО (Т)	[21]
	1570	68	85	~30	Лазерная абляция (R)	[4]
Er,Yb:фосфатное стекло	1562	261	75	63		[5]
	Tm:KLu(WO ₄) ₂	1944	9700	126	240	Дуговой разряд (Т)
Yb:KY(WO ₄) ₂	1038	133	87	160	СО (Т)	[7]
Cr:Mg ₂ SiO ₄	1242	100	79	230		
Cr:Y ₃ Al ₅ O ₁₂ (YAG)	1495	92	85	110		
Yb:KLu(WO ₄) ₂	1069	84	89	62		
Cr:Mg ₂ SiO ₄	1243	118	79	250	Дуговой разряд – СО (Т)	[23]
Cr:Y ₃ Al ₅ O ₁₂ (YAG)	1485	113	85	85		
Tm:KLu(WO ₄) ₂	1942	25400	130	167		

Первым узкополосным кристаллическим Nd-лазером с синхронизацией мод за счет ОУНТ-НП был лазер на Nd:BaY₂F₈ [12]. С использованием такого же отражательного НП, как и в [13, 17], была достигнута генерация пикосекундных импульсов из резонатора без компенсации дисперсии. Тот факт, что при идентичных условиях режим синхронизации мод в Nd:YAG- и Nd:YVO₄-лазерах не достигался, был объяснен сильным насыщением усиления. Для подавления этого эффекта потребовалось бы более высокое отношение насыщающихся потерь к ненаасыщающимся. Со временем применение очищенных полупроводниковых ОУНТ с хиральностью 7.5 в НП отражательного типа, используемом в качестве концевого зеркала резонатора без компенсации дисперсии, позволило достичь в керамическом Nd:YAG-лазере синхронизации мод с генерацией пикосекундного импульса [16]. Измерения, проведенные методом z-сканирования на $\lambda = 1040$ нм в [16], дали примерно в 10 раз большие насыщающиеся и ненаасыщающиеся потери и в ~10 раз меньшую плотность потока энергии насыщения (см. разд.2). Лазер на смешанном (разупорядоченном) кристалле ванадата Nd:Lu_{0.15}Y_{0.85}VO₄ с более широкой полосой флуоресценции и меньшим сечением испускания был также успешно переведен в режим синхронизации мод с помощью ОУНТ-НП пропускающего типа [15] в резонаторе без компенсации дисперсии. Однако этот тип НП имел малую глубину модуляции при высоких ненаасыщающихся потерях и большой плотности потока энергии насыщения, а синхронизация мод в непрерывном режиме генерации происходила только над областью синхронизации мод с модуляцией добротности. При этом полученная длительность импульса (19 пс) была слишком велика по сравне-

нию с обратной полосой усиления. Самая высокая средняя мощность (3.63 Вт) из когда-либо достигнутых с помощью ОУНТ-НП в пикосекундном твердотельном лазере с синхронизацией мод, была получена в случае Nd:GdVO₄ [14]. Для увеличения сопротивляемости пробоем НП пропускающего типа был изготовлен без полимера. Он продемонстрировал примерно в 10 раз большие насыщающиеся поглощение и плотность потока энергии насыщения (по сравнению с рассмотренными в разд.2), однако его ненаасыщающиеся потери примерно в пять раз превышали насыщающиеся.

Недавно ОУНТ-НП использовались также на длине волны 1.34 мкм для синхронизации мод Nd:YVO₄-лазера с диодной накачкой, работающего на переходе ⁴F_{3/2} → ⁴I_{13/2} [20]. Пикосекундные импульсы генерировались в резонаторе, оптимизированном на большой объем фундаментальной моды. С НП пропускающего типа на базе СО-ОУНТ энергии импульсов, достигнутые в этом первом эксперименте, были вполне сопоставимы с лучшими результатами, полученными при синхронизации мод с помощью SESAM (более или менее экзотичными для этой длины волны), тогда как длительность импульса (16.5 пс, без компенсации дисперсии) была существенно меньше.

В отличие от аналогичных Nd-лазеров, лазеры на кристаллах, легированных Yb, могут обеспечить фемтосекундные длительности импульсов вблизи длины волны 1 мкм с использованием резонаторов с внутрирезонаторной компенсацией дисперсии. Моноклинные двойные вольфраматы являются кристаллами, обеспечивающими одну из самых широких полос излучения. Мы успешно синхронизовали моды Yb:KLu(WO₄)₂- и Yb:KY(WO₄)₂-лазеров с использованием дуговых ОУНТ-НП как про-

пускающего, так и отражающего типа в резонаторах, содержащих призмную пару для компенсации дисперсии [10, 11]. Были получены импульсы длительностью менее 100 фс, что близко к результатам, получаемым с SESAM, широко используемым в этом диапазоне длин волн. Заметим, что такие широкополосные Yb-лазеры могут перестраиваться по длине волны (в относительно небольшом диапазоне длин волн), все еще генерируя фемтосекундные импульсы [10].

Лазер на Cr^{4+} :форстерите был первым лазером на переходном металле, перестраиваемым в широком диапазоне длин волн, в котором мы пытались синхронизовать моды с использованием НП на СО-ОУНТ пропускающего типа, поскольку в этом диапазоне (вблизи 1.25 мкм) SESAM просто отсутствуют. В фемтосекундном режиме была достигнута самостартующая генерация, управление дисперсией осуществлялось внутррезонаторной парой призм [18]. При НП отражательного типа, использованном в сходном резонаторе, генерировались импульсы длительностью 80 фс на $\lambda = 1250$ нм со средней мощностью 295 мВт – самой высокой мощностью из когда-либо достигнутых в любом фемтосекундном лазере на ОУНТ-НП с синхронизацией мод [19]. Мы также успешно синхронизовали моды родственного Cr:YAG-лазера на больших (в окрестности 1.5 мкм) длинах волн с использованием аналогичных НП на основе СО-ОУНТ пропускающего типа, работающих на том же полупроводниковом переходе E_{11} . При внутррезонаторной компенсации дисперсии была достигнута устойчивая самостартующая генерация с синхронизацией мод. Генерировались спектрально-ограниченные импульсы длительностью менее 100 фс, перестраиваемые в спектральном диапазоне 1460–1500 нм [21].

ОУНТ на краях спектрального охвата (см. рис.1) были успешно использованы нами для синхронизации мод Ti:сапфировых лазеров на $\lambda = 800$ нм и Tm-лазеров вблизи 1.95 мкм. В случае Ti:сапфира был задействован полупроводниковый переход E_{22} в НП на основе СО-ОУНТ пропускающего типа с использованием внутррезонаторной пары призм для компенсации дисперсии. Известно, что моды в Ti:сапфировых лазерах самосинхронизируются (синхронизация мод за счет керровской линзы). Однако, в отличие от общепринятого мнения, синхронизация мод, поддерживаемая ОУНТ-НП, позволила получить меньшие длительности импульсов и более широкие спектральные полосы, чем при «чистой» керровской самосинхронизации [9]. При средней мощности 600 мВт были получены весьма короткие (62 фс) импульсы. Оба значения более чем на порядок лучше достигнутых авторами [8]. Наш фемтосекундный Ti:сапфировый лазер легко перестраивался между 780 и 825 нм. Таким образом, несмотря на двухфотонное поглощение, которое имеет место при больших мощностях, можно сделать вывод, что дешевые и простым образом сконструированные ОУНТ-НП могут быть успешно использованы в качестве альтернативы широко распространенным SESAM и для сверхбыстрых Ti:сапфировых лазеров.

В случае Tm:KLu(WO₄)₂-лазера мы использовали переход E_{11} в дуговом ОУНТ-НП. Преимуществом матрицы двойного вольфрамата является относительно короткое время жизни состояний Tm, что полезно с точки зрения подавления неустойчивостей из-за модуляции добротности. В отсутствие внутррезонаторной компенсации дисперсии была достигнута самостартующая и устойчивая синхронизация мод со спектрально-ограниченными

импульсами длительностью 9.7 пс на 1944 нм [22]. Хотя полоса излучения Tm:KLu(WO₄)₂-лазера обеспечивает гораздо меньшие длительности импульсов, следует подчеркнуть, что в этом отправном эксперименте впервые продемонстрирована пассивная синхронизация мод твердотельного лазера на Tm или Ho вблизи 2 мкм.

НП пропускающего типа на основе ОУНТ имеют уникальную возможность универсального применения в различных типах лазеров. Для экспериментальной проверки мы использовали один и тот же НП на основе СО-ОУНТ для синхронизации мод трех разных твердотельных лазеров на переходе E_{11} полупроводникового типа, а именно Yb:KY(WO₄)₂-лазера ($\lambda \sim 1.04$ мкм), лазера на Cr:форстерите (~ 1.24 мкм) и Cr:YAG-лазера (~ 1.5 мкм) [7]. На самом деле, из табл.1 следует, что это тот же НП, который использовался ранее для синхронизации мод Cr:YAG-лазера [21]. Все лазеры работали в фемтосекундном режиме с внутррезонаторной парой призм для компенсации дисперсии. Автокорреляционные измерения показали, что длительности импульсов составляют 92–133 фс [7]. Во всех случаях это дает произведение длительность–полоса менее 0.34, т. е. близкое к фурье-пределу. Везде была обеспечена устойчивая синхронизация мод, о чем свидетельствует отсутствие пьедестала (на уровне свыше 60 дБ) у межимодовых биений. Практичное и безусловное отсутствие нестабильностей из-за модуляции добротности во всех трех лазерах подтверждает, что плотность потока энергии насыщения этого типа ОУНТ-НП очень низкая.

Синхронизация мод трех упомянутых выше объемных фемтосекундных лазеров в спектральном диапазоне 1–1.5 мкм была самостартующей и могла поддерживаться в течение часов. Никаких признаков деградации после нескольких месяцев работы в обычных атмосферных условиях, без принудительного охлаждения устройства, замечено не было. Это представляет весьма примечательным, т. к. НП функционировал при внутррезонаторных пиковых интенсивностях, близких к 10^9 Вт/см², и при плотностях потоков энергии вплоть до $100F_{\text{sat}}$. Однако нужно напомнить, что ненасыщающиеся потери в ОУНТ обусловлены только рассеянием и, следовательно, не могут вызвать нагрева образца. Таким образом, эта достаточно благоприятная природа ненасыщающихся потерь и большая ширина запрещенной зоны ПММА-матрицы отличают НП на основе ОУНТ от SESAM.

В последнее время мы достигли ширины спектральной полосы покрытия, охватывающей октаву (~ 1000 нм), смешивая две по-разному выращенные ОУНТ. Это гибридное сверхширокополосное НП-устройство было использовано для синхронизации мод в твердотельных лазерах на основе Yb, Cr и Tm с длинами волн около 1.07, 1.24, 1.5 и 1.94 мкм (предварительные результаты сообщались в [23], см. табл.1). Спектроскопические исследования методом возбуждения–зондирования на разных длинах волн (1–2 мкм) выявила для этого образца сходное биэкспоненциальное поведение с характерным временем релаксации медленной компоненты менее 2 пс. Измерения нелинейного пропускания ОУНТ-НП гибридного типа обнаружили, что при типичных глубинах модуляции менее 0.5% ненасыщающиеся потери составляют $\sim 1.0\%$, а плотности потока энергии насыщения не превышают 10 мДж/см².

В экспериментах по синхронизации мод с помощью гибридных ОУНТ-НП в качестве активных сред использовались Yb:KLu(WO₄)₂, Cr:форстерит, Cr:YAG

и $\text{Tm:KLu(WO}_4)_2$. Во всех случаях базисные конфигурации лазеров были сходными. Исключением являлся $\text{Tm:KLu(WO}_4)_2$ -лазер, в котором для компенсации дисперсии призмная пара вставлялась в одно из плеч резонатора, содержащее выходной элемент связи. Лазеры могли быть введены в режим синхронизации мод либо в режиме самостарта, либо при небольшом перемещении призмы или ОУНТ-НП без многократных колебаний в широком диапазоне мощностей, стартуя с небольших превышений порогов генерации. Кроме того, для этого гибридного типа ОУНТ-НП признаки повреждений или деградации эксплуатационных характеристик после нескольких месяцев использования при комнатной температуре не наблюдались.

На рис.4 приведены измеренные автокорреляционные функции импульсов с синхронизацией мод для четырех твердотельных лазеров: $\text{Yb:KLu(WO}_4)_2$ -лазер, лазер на Cr:форстерите и Cr:YAG -лазер с ОУНТ-НП синхронизацией мод на ~ 1.07 , ~ 1.24 и ~ 1.5 мкм соответственно генерировали близкие к спектрально-ограниченным импульсы длительностью 84–118 фс, в то время как $\text{Tm:KLu(WO}_4)_2$ -лазер генерировал импульсы длительностью ~ 25 пс без компенсации дисперсии (см. табл.1). Соответствующие спектры лазерного излучения показаны на вставках рис.4. При устойчивой синхронизации мод выходные мощности вплоть до 62 мВт генерировались в $\text{Yb:KLu(WO}_4)_2$ -лазере с коэффициентом пропускания

1%, 250 мВт в лазере на Cr:форстерите (7%), 85 мВт в Cr:YAG -лазере (2%) и 167 мВт в $\text{Tm:KLu(WO}_4)_2$ -лазере (1.5%). Во всех случаях зарегистрированные радиочастотные спектры на основном тоне биений частот следования импульсов демонстрировали коэффициенты ослабления по отношению к несущей свыше 55 дБ. Это является свидетельством устойчивой непрерывной одноимпульсной синхронизации мод без нестабильностей, обусловленных модуляцией добротности.

4. Выводы

Наши исследования НП на основе ОУНТ показывают, что топология изгибания нанотрубок является ключевым параметром с точки зрения эксплуатационных характеристик сверхширокополосных НП-устройств. С использованием полезных взаимодействий трубка–трубка время отклика поглотителя может быть уменьшено без увеличения потерь на рассеяние. Независимые друг от друга последствия изгиба и изгибания дают возможность комбинировать несомненно противоречивые параметры устройства, такие как низкие ненасыщающиеся потери, почти мгновенная скорость переключения, широкая оптическая полоса и низкая плотность потока энергии насыщения. В результате параметры устройства могут быть просто подогнаны с помощью существующих полупроводниковых технологий.

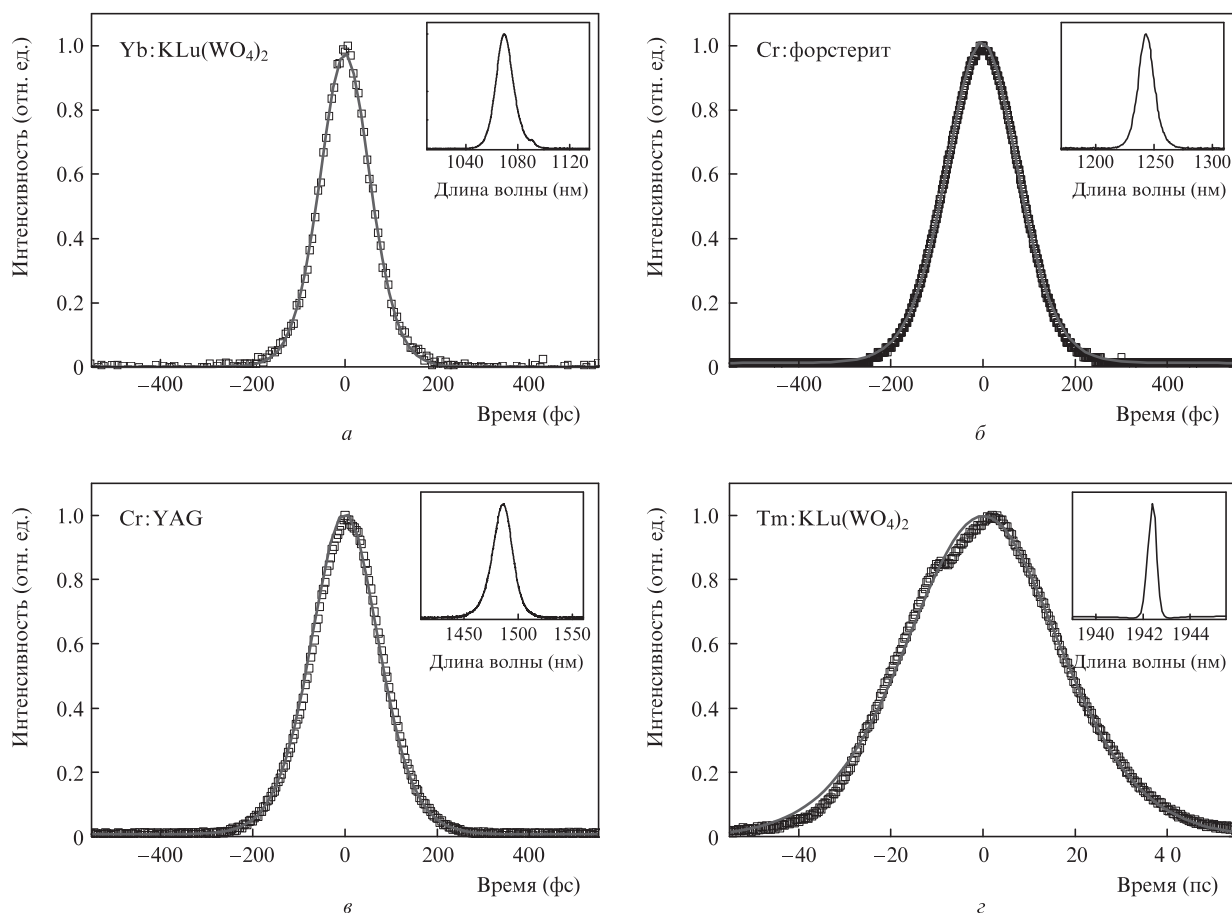


Рис.4. Автокорреляционные функции для $\text{Yb:KLu(WO}_4)_2$ -лазера (центральная длина волны 1069 нм, длительность импульса $\tau = 84$ фс) (а), лазера на Cr:форстерите (1243 нм, 118 фс) (б), Cr:YAG -лазера (1485 нм, 113 фс) (в) и $\text{Tm:KLu(WO}_4)_2$ -лазера (1942 нм, 25,4 пс) (г) с синхронизацией мод одним и тем же сверхширокополосным ОУНТ-НП гибридного типа. На вставках – соответствующие оптические спектры (ширина на полувысоте $\Delta\nu = 15.4$ нм, $\tau\Delta\nu = 0.34$ (а), 15,6 нм, 0,36 (б), 21,3 нм, 0,33 (в) и 0,45 нм, 0,91 (г)). Длительность импульса τ оценивается в предположении sech^2 профилей интенсивности.

Тщательный контроль жгутования и изгиба ОУНТ в оптимизированном процессе изготовления НП позволяет использовать одно унифицированное устройство, обеспечивающее чрезвычайно широкополосное (более 500 нм) сверхбыстрое насыщающееся поглощение со спектральной полосой, охватывающей октаву. Таким образом, синхронизация мод разных твердотельных лазеров, генерирующих в спектральном диапазоне 1–2 мкм, может быть достигнута с одним и тем же ОУНТ-НП пропускающего типа. Дальнейшая оптимизация жгутования нанотрубок, ненасыщающихся потерь и поведения поглощения сделало бы это НП-устройство привлекательной альтернативой сложным насыщающимся поглотителям, таким как обычные SESAM, которые к тому же трудны в изготовлении для некоторых длин волн из указанного выше диапазона.

Авторы благодарят за финансовую поддержку Национальный исследовательский фонд (NRF), финансируемый правительством Кореи (MEST) (гранты № 2011-0017494 и 2011-0001054).

- Set S.Y., Yaguchi H., Tanaka Y., Jablonski M. *J. Lightwave Technol.*, **22**, 51 (2004).
- Wang F., Rozhin A.G., Scardaci V., Sun Z., Hennrich F., White I.H., Milne W.I., Ferrari A.C. *Nature Nanotechnol.*, **3**, 738 (2008).
- Hasan T., Sun Z., Wang F., Bonaccorso F., Tan P.H., Rozhin A.G., Ferrari A.C. *Adv. Mater.*, **21**, 3874 (2009).
- Schibli T.R., Minoshima K., Kataura H., Itoga E., Minami N., Kazaoui S., Miyashita K., Tokumoto M., Sakakibara Y. *Opt. Express*, **13**, 8025 (2005).
- Fong K.H., Kikuchi K., Goh C.S., Set S.Y., Grange R., Haiml M., Schlatter A., Keller U. *Opt. Lett.*, **32**, 38 (2007).
- Yim J.H., Cho W.B., Lee S., Ahn Y.H., Kim K., Lim H., Steinmeyer G., Petrov V., Griebner U., Rotermund F. *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 161106/1-3 (2008).
- Cho W.B., Yim J.H., Choi S.Y., Lee S., Schmidt A., Steinmeyer G., Griebner U., Petrov V., Yeom D.-I., Kim K., Rotermund F. *Adv. Funct. Mater.*, **20**, 1937 (2010).
- Khudyakov D.V., Lobach A.S., Nadochenko V.A. *Opt. Lett.*, **35**, 2675 (2010).
- Baek I.H., Choi S.Y., Lee H.W., Cho W.B., Petrov V., Agnesi A., Pasiskevicius V., Yeom D.-I., Kim K., Rotermund F. *Opt. Express*, **19**, 7833 (2011).
- Schmidt A., Rivier S., Cho W.B., Yim J.H., Choi S.Y., Lee S., Rotermund F., Rytz D., Steinmeyer G., Petrov V., Griebner U. *Opt. Express*, **17**, 20109 (2009).
- Schmidt A., Rivier S., Steinmeyer G., Yim J.H., Cho W.B., Lee S., Rotermund F., Pujol M.C., Mateos X., Aguiló M., Díaz F., Petrov V., Griebner U. *Opt. Lett.*, **33**, 729 (2008).
- Agnesi A., Carrà L., Pirzio F., Reali G., Toncelli A., Tonelli M., Choi S.Y., Rotermund F., Griebner U., Petrov V. *J. Opt. Soc. Am. B*, **27**, 2739 (2010).
- Agnesi A., Greborio A., Pirzio F., Ugolotti E., Reali G., Choi S.Y., Rotermund F., Griebner U., Petrov V. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, in press.
- Chen H.-R., Wang Y.-G., Tsai C.-Y., Lin K.-H., Chang T.-Y., Tang J., Hsieh W.-F. *Opt. Lett.*, **36**, 1284 (2011).
- Yang K., Zhao S., Zhang G., Cheng K., Zhao B., Xu J., He J., Wang Y. *Opt. Commun.*, **285**, 158 (2012).
- Tan W.D., Chen F., Knize R.J., Zhang J., Tang D., Li L.-J. *Opt. Mater.*, **33**, 679 (2011).
- Agnesi A., Greborio A., Pirzio F., Reali G., Choi S.Y., Rotermund F., Griebner U., Petrov V. *Appl. Phys. Express*, **3**, 112702/1-3 (2010).
- Cho W.B., Yim J.H., Choi S.Y., Lee S., Griebner U., Petrov V., Rotermund F. *Opt. Lett.*, **33**, 2449 (2008).
- Cho W.B., Choi S.-Y., Kim J.-W., Yeom D.-I., Kim K.-H., Rotermund F., Lim H.-J. *J. Opt. Soc. Korea*, **15**, 56 (2011).
- Iliev H., Buchvarov I., Choi S.Y., Kim K., Rotermund F., Griebner U., Petrov V. *Appl. Phys. B*, in press.
- Cho W.B., Schmidt A., Choi S.Y., Petrov V., Griebner U., Steinmeyer G., Lee S., Yeom D.-I., Rotermund F. *Opt. Lett.*, **35**, 2669 (2010).
- Cho W.B., Schmidt A., Yim J.H., Choi S.Y., Lee S., Rotermund F., Griebner U., Steinmeyer G., Petrov V., Mateos X., Pujol M.C., Carvajal J.J., Aguiló M., Díaz F. *Opt. Express*, **17**, 11007 (2009).
- Choi S.Y., Cho W.B., Yeom D.-I., Kim K., Rotermund F., Kim J.-H., Yee K.-J., Schmidt A., Steinmeyer G., Petrov V., Griebner U., in *Techn. Digest Advanced Solid-State Photonics* (Istanbul, Turkey, 2011, p.16).